(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



1 (8016 01) 1833 11 (1811 1 EXTRI 1181 1 1) 11 K SONT 91817 1181 8541 8181 (1818) 1831 1191 1831

(43) 国際公開日 2001年1月18日(18.01.2001)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 01/04204 A1

(51) 国際特許分類7:

C08L 101/00, C09K 21/12

C08K 5/527,

(21) 国際出願番号:

PCT/JP00/04004

(22) 国際出願日:

2000年6月19日(19.06.2000)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

JP

(30) 優先権データ:

1999年7月9日 (09.07.1999) 特願平11/195958

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 大八化学 工業株式会社 (DAIHACHI CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) [JP/JP]; 〒541-0046 大阪府大阪市中央区平 野町1丁目8番13号 平野町八千代ビル Osaka (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 徳安範昭 (TOKUYASU, Noriaki) [JP/JP]; 〒477-0032 愛知県東 海市加木屋町小家ノ脇5-420 Aichi (JP). 亀田勝美 (KAMEDA, Katumi) [JP/JP]; 〒470-2103 愛知県知多 郡東浦町石浜芦間10-1 Aichi (JP).

(74) 代理人: 野河信太郎(NOGAWA, Shintaro); 〒530-0047 大阪府大阪市北区西天満5-1-3 南森町パークビル Osaka (JP).

/続葉有/

(54) Title: FLAME RETARDANTS FOR RESINS AND FLAME-RETARDED RESIN COMPOSITIONS CONTAINING THE SAME

(54)発明の名称:樹脂用難燃剤およびそれを含有する難燃性樹脂組成物

$$\begin{array}{ccc} R_1 & C & C & C & C \\ R_2 & C & P & C & R_3 & (I) \end{array}$$

(57) Abstract: Flame retardants for resins, which contain as the principal component phosphorinane-type phosphates represented by general formula (1) (wherein R₁ and R₂ are each independently C₁-C₆ alkyl; and R₃ is C₁-C₂₀ alkyl), and which can impart excellent flame retardance to resins without lowering in the physical properties inherent in the resins and are excellent in resistance to hydrolysis and free from halogen; and flame-retarded resin com-

positions excellent in mechanical characteristics.

(57) 要約:

本発明は、一般式(I):

$$\begin{array}{c} R_1 \setminus C H_2 O \setminus O \\ C \setminus C H_2 O \end{array}$$

$$R_2 \setminus C H_2 O \setminus O \cap R_3$$

(式中、 R_1 および R_2 は同一または異なって、炭素数 $1 \sim 6$ のアルキ ル基を示し、 R_3 は炭素数 $1\sim20$ のアルキル基を示す)で表されるホ スホリナン構造を有するリン酸エステルを主成分として含有する樹脂用 難燃剤に関する。本発明は、各種樹脂に添加した際に、樹脂本来の物性 を低下させることなしに、樹脂に優れた難燃性を付与し、高い耐加水分 解性を有する、ハロゲンを含有しない難燃剤および機械的特性に優れた 難燃性樹脂組成物を提供する。

WO 01/04204 A

ij

- (81) 指定国 (国内): CN, JP, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, のガイダンスノート」を参照。 DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開 類:

— 国際調査報告書

明細書

樹脂用難燃剤およびそれを含有する難燃性樹脂組成物

5 技術分野

本発明は、ホスホリナン構造を有するリン酸エステルを主成分とする 樹脂用難燃剤およびそれを含有する難燃性樹脂組成物に関する。

背景技術

25

- 10 ポリプロピレン、ポリスチレン、アクリロニトリルーブタジエンースチレン (ABS) 樹脂などの熱可塑性樹脂、およびポリウレタン、フェノール樹脂などの熱硬化性樹脂は、比較的安価に製造でき、かつ成形が容易であるなどの優れた特性を有する。このため、これらの樹脂は電子部品や自動車部品をはじめ生活用品全般にわたり広く使用されている。
- 15 しかしながら、樹脂自体が易燃性であるために、ひとたび火災が発生すると簡単に燃焼・消失する。特に、電気あるいは通信ケーブルのような公共施設での火災は、社会機能に多大な影響を与える。そこで、今日では電気製品、自動車の内装品、繊維製品など、樹脂の利用分野の一部では法律で難燃化が義務づけられている。この難燃規制としては、例えな、米国の電気製品におけるUL規格、自動車関係におけるFMVSS-302などが知られている。

樹脂に難燃性を付与するためには、一般に成形用樹脂組成物の調製時 に樹脂用難燃剤(以下、「難燃剤」と称する)を添加する方法が採用さ れている。難燃剤としては、無機化合物、有機リン化合物、有機ハロゲ ン化合物、ハロゲン含有有機リン化合物などがある。

上記の化合物のうち優れた難燃効果を発揮するのは、有機ハロゲン化

10

15

20

25



合物およびハロゲン含有有機リン化合物である。しかし、これらのハロゲンを含有する化合物は、樹脂成形時に熱分解してハロゲン化水素を発生する。これにより成形金型の腐食、樹脂自体の劣化、着色などの問題が起こる。また、ハロゲン化水素は毒性を有するため、作業環境を悪化させるばかりでなく、火災のような燃焼に際して、ハロゲンを含有する化合物からハロゲン化水素やダイオキシンのような有毒ガスを発生し、人体に悪影響を与える。

樹脂成形時などに生じる着色は、一般に脱ハロゲン反応により生じる リン酸や塩化水素、およびアミン共存下に生じるアミン塩酸塩に起因す るものと考えられている。

ハロゲンを含有しない難燃剤として、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、水酸化カルシウムなどの無機化合物がある。しかし、これらの無機化合物は難燃効果が著しく低く、充分な効果を得るためには多量に添加する必要があり、それにより樹脂本来の物性、特に樹脂成型品の機械的特性が損なわれる。

したがって、ハロゲンを含有しないで、かつ上記のような問題を生じない難燃剤の開発が強く求められている。

米国特許第5,750,601号には、ハロゲンを含有しない難燃剤 として、5,5-ジメチルー2-オキソー2-フェノキシー1,3,2-ジオキサホス ホリナンが記載されている。

しかし、上記の化合物は常温~樹脂の成形温度の範囲では固体の化合物であり、樹脂原料との混合および樹脂原料中への均一な分散が困難である。例えば、ポリウレタンフォームは、予め固体の難燃剤を分散させておいたポリオールとジイソシアネートとを縮合反応させて得られるが、ポリオール中の難燃剤が沈降して均一に分散しないという問題があった。また、難燃剤が固体であるために、成形用樹脂組成物の調製時において、



難燃剤を樹脂原料に加える際に、定量的な自動添加が困難で、取扱い難いという問題もあった。

発明の開示

5 本発明は、上記のような先行技術の欠点を解決するものであり、各種 樹脂に添加した際に樹脂本来の物性を低下させることなしに、樹脂に優 れた難燃性を付与し、高い耐加水分解性を有する、ハロゲンを含有しな い難燃剤および機械的特性に優れた難燃性樹脂組成物を提供することを 課題とする。

10 本発明者らは上記課題を解決するために鋭意研究の結果、特定のリン酸エステルを樹脂に配合することを見出し、本発明を完成するに到った。また、本発明の一般式 (I) で表されるリン酸エステルの中で、基R」および R_2 がメチル基で、かつ基 R_3 がメチル基である化合物は、例えば、潤滑油成分として知られているが、難燃剤として用いた場合に意外にも優れた効果が見出された。

かくして、本発明によれば、一般式(I):

$$\begin{array}{c|c}
R_1 & C & C & C \\
C & P & C & R_3
\end{array}$$
(I)

(式中、 R_1 および R_2 は同一または異なって、炭素数 $1 \sim 6$ のアルキル基を示し、 R_3 は炭素数 $1 \sim 2$ 0 のアルキル基を示す)

20 で表されるリン酸エステル (以下、「リン酸エステル (I)」と称する) を含有する難燃剤が提供される。

また、本発明によれば、樹脂に、難燃剤として上記の難燃剤を含有してなる難燃性樹脂組成物(以下、「樹脂組成物」と称する)が提供される。

WO 01/04204 PCT/JP00/04004

発明の実施の形態

15

本発明の難燃剤に含有されるリン酸エステルは、前記の一般式(I)で表される。

一般式(II)において、 R_7 および R_2 で表される炭素数 $1\sim6$ のア

5 ルキル基としては、直鎖状または分岐鎖状のアルキル基が挙げられる。 具体的には、メチル、エチル、n-プロピル、n-ブチル、n-ペンチル、n-ヘキシルのような直鎖状のアルキル基、および iso-プロピル、iso-ブ チル、sec-ブチル、 tert-ブチル、iso-ペンチル、 tert-ペンチル、 neo-ペンチル、iso-ヘキシルなどの分岐鎖状のアルキル基が挙げられる。

10 中でも炭素数 1 ~ 4 の直鎖状または分岐鎖状のアルキル基が好ましく、 メチル基が特に好ましい。

 R_3 で表される炭素数 $1\sim 20$ のアルキル基としては、直鎖状または 分岐鎖状のアルキル基が挙げられ、中でも炭素数 $1\sim 18$ のアルキル基 が好ましい。具体的には、上記の R_1 、 R_2 に例示したアルキル基に加

えて、n-ヘプチル、n-オクチル、n-ノニル、n-デシル、n-ドデシル、n-テトラデシル、n-ヘキサデシル、n-オクタデシルなどの直鎖状のアルキル基、ならびにメチルヘキシル、メチルヘプチル、2-エチルヘキシル、iso-デシル、iso-ドデシル、iso-テトラデシル、iso-ヘキサデシル、iso-オクタデシルなどの分岐鎖状のアルキル基が挙げられる。中でも炭

20 素数 1~4の直鎖状または分岐鎖状の低級アルキル基が好ましく、n-プロピル基および n-ブチル基が特に好ましい。

 R_3 が低級アルキル基であるリン酸エステル(I)は、常温で液体で、かつ低粘度($15\sim40$ c p s / 25 $^{\circ}$ C)であり、難燃剤として好ましい物性を有する。

25 リン酸エステル (I) の具体例としては、製造例1および製造例2に 記載する化合物が挙げられる。

25



本発明のリン酸エステル(I)は、製造時の副反応物や未反応原料などの不純物を含有することもあるが、それらの不純物が樹脂組成物の耐熱性および難燃性に悪影響を及ぼさないものであれば、改めて精製することなく、難燃剤として使用してもよい。

5 本発明の難燃剤は、2種以上のリン酸エステル (I)の混合物であってもよい。

本発明の樹脂組成物は、樹脂に上記の難燃剤を含有してなる。

樹脂としては、塩素化ポリエチレン、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブタジエン、スチレン系樹脂、耐衝撃性ポリスチレン、ポリ塩化ビ 10 ニル、アクリロニトリルー塩素化ポリエチレンースチレン (ACS) 樹脂、アクリロニトリルースチレン (AS) 樹脂、ABS樹脂、ポリフェニレンエーテル、変性ポリフェニレンエーテル、ポリメチルメタクリレート、ポリアミド、ポリエステル、ポリカーボネートなどの熱可塑性樹脂、およびポリウレタン、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、メラミン樹15 脂、尿素樹脂、不飽和ポリエステルなどの熱硬化性樹脂が挙げられる。これらの樹脂は2種以上の混合体であってもよい。

上記の樹脂の中でも、ハロゲンを含有しない樹脂が好ましい。

すなわち、本発明のハロゲンを含有しない難燃剤と、同様にハロゲン を含有しない樹脂とを組み合わせることにより、様々な悪影響を及ぼす 有毒なハロゲン含有ガスの発生を完全に克服することができる。

また、ハロゲンを含有しない樹脂の中でも、ポリウレタンが特に好ま しい。

ポリウレタンは、ポリオールとジイソシアネートとの縮合反応によって製造され、難燃剤はポリオールに分散させて用いられる。本発明の難燃剤は低粘度の液体であり、ポリオール中に均一に分散させることができ、しかも本来高粘度であるポリオールの粘度を低下させることができ

るので、沈降や分散不良などの問題が解消される。

また、本発明の難燃剤は、樹脂原料または成形用樹脂組成物の調製時に定量的に自動添加でき、難燃剤とポリオールとをプレミックスしたものを保存できるので、保存性および作業性が向上する。

5 得られるポリウレタンは、難燃剤が均一に配合されているので、優れ た難燃性が長期間にわたり維持される。

本発明の樹脂組成物中の難燃剤の配合量は、リン酸エステル(I)の 種類や樹脂の種類、成形品の用途や要求される性能(例えば、難燃性) に応じて適宜選定することができる。

10 難燃剤としてのリン酸エステル(I)の配合量は、通常、樹脂100 重量部に対して0.05重量部以上であればよく、好ましくは0.1~ 50重量部、さらに好ましくは5~20重量部である。リン酸エステル (I)の配合量が0.05重量部未満の場合には、樹脂に充分な難燃性 を付与できないので好ましくない。また、リン酸エステル(I)の配合 量が50重量部を超える場合には、樹脂の物性低下につながるため好ま しくない。なお、樹脂がポリウレタンの場合には、ポリウレタンを製造 する工程に難燃剤を添加することが望ましい。その際の難燃剤の添加量 は、原料となるポリオールとジイソシアネートとの合計量100重量部 に対して、リン酸エステル(I)を上記の範囲で配合すればよい。

20 本発明の樹脂組成物には、必要に応じて難燃性を付与すべき樹脂の物性を損なわない範囲で、必要に応じて他の樹脂用添加剤が配合されていてもよい。

そのような樹脂用添加剤としては、リン酸エステル (I) 以外の難燃剤、酸化防止剤、無機充填剤、帯電防止剤、紫外線吸収剤、滑剤などが挙げられる。

25

リン酸エステル (I) 以外の難燃剤としては、リン酸トリメチル、リ

ン酸トリエチル、リン酸トリブチル、リン酸トリフェニル、リン酸トリクレジル、リン酸クレジルジフェニル、リン酸トリ2-エチルヘキシルなどの有機リン化合物;メラミン、ベンゾグアナミン、尿素、ポリリン酸アンモニウム、ピロリン酸アンモニウムなどの窒素含有化合物;および水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、ホウ酸亜鉛などの金属化合物などが挙げられる。

酸化防止剤としては、トリフェニルホスファイト、トリス(ノニルフェニル)ホスファイト、ジフェニルイソデシルホスファイト、ビス (2,4-ジ-tert-ブチルフェニル) ペンタエリスリトールジホスファイト およびテトラキス (2,4-ジ-tert-ブチルフェニル) ー4,4-ジフェニレンホスホナイトなどの三価のリン化合物のようなリン系化合物;ヒドロキノン、2,5-ジ-tert-ブチルヒドロキノン、オクチルヒドロキノン、2,5-tert-アミルヒドロキノンなどのヒドロキノン系化合物;フェノール系 化合物;アミン系化合物;硫黄系化合物などが挙げられる。

15 無機充填剤としては、マイカ、タルク、アルミナなどが挙げられる。 帯電防止剤としては、カチオン系界面活性剤、非イオン系界面活性剤 などが挙げられる。

紫外線吸収剤としては、ベンゾフェノン系化合物、サリチレート系化 合物、ベンゾトリアゾール系化合物などが挙げられる。

20 滑剤としては、脂肪酸系化合物、脂肪酸アミド系化合物、エステル系 化合物、アルコール系化合物などが挙げられる。

本発明の樹脂組成物の製造に際して、各成分の配合順序や混合方法は特に限定されない。

例えば、樹脂組成物は、難燃剤、樹脂および必要に応じて他の樹脂用 25 添加剤を公知の方法で混合、溶融混練することにより得られる。混合お よび溶融混練には、単軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、ニ WO 01/04204 PCT/JP00/04004

ーダーミキサーなど、汎用の装置を単独または組み合わせて用いること ができる。

また、樹脂を塊状重合により製造する場合には、①単量体の供給時、 ②塊状重合の反応終期および③重合体の成形時のいずれの時期に難燃剤 を添加してもよい。

得られた樹脂組成物を、さらに公知の方法で成形加工することにより、 所望の形状、例えば、板状、シート状またはフィルム状の成形体を得る ことができる。

本発明のリン酸エステル(I)は、例えば、米国特許第5,750,10601号に記載された方法(但し、フェノールに代えて脂肪族飽和アルコールを用いる)により製造することができる。

参考のため、以下にリン酸エステル(I)の製造方法について記載する。

(製造方法1)

5

15 まず、オキシ塩化リンと、オキシ塩化リン1モルに対して0.9~1. 2モル (好ましくは0.95~1.05モル) のジオール系化合物とを 反応させて、一般式 (II):

$$R_{1} \setminus C H_{2}O \setminus_{P}^{O} - C1$$

$$R_{2} \setminus C H_{2}O \setminus_{C}^{O} + C1$$

$$(II)$$

(式中、 R^1 および R^2 は同一または異なって、炭素数 $1 \sim 6$ のアルキ 20 ル基を示す)で表される化合物を得る。

ジオール系化合物としては、2,2-ジアルキルー1,3-プロパンジオールが好ましい。具体的には、2,2-ジメチルー1,3-プロパンジオール(=ネオペンチルグリコール)、2-メチルー2-エチルー1,3-プロパンジオール、2,2-ジエチルー1,3-プロパンジオール、2,2-ジエチルー1,3-プロパンジオール





ンジオール、2,2-ジー \sec -ブチルー1,3-プロパンジオール、2,2-ジー tert -ブチルー1,3-プロパンジオール、2-エチルー2- n -ブチルー1,3-プロパンジオール、2,2-ジー $\operatorname{n-}$ ペンチルー1,3-プロパンジオール、2,2-ジー $\operatorname{n-}$ オクチルー1,3-プロパンジオールなどが挙げられるが、価格面や入手し易さの点でネオペンチルグリコールが特に好ましい。

生成する化合物(II)が固体であるため、反応を円滑に進め、生成物の結晶化による取扱い難さを防ぐ意味で、この反応は有機溶媒中で行うのが好ましい。

有機溶媒としては、不活性な有機溶媒、すなわち、オキシ塩化リン、 10 ジオール系化合物および反応中に副生する塩化水素と副反応を伴わない ものが好ましい。

具体的には、ヘキサン、シクロヘキサン、ヘプタン、オクタン、ベンゼン、トルエン、キシレン、石油スピリットなどの炭化水素系溶媒、クロロホルム、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、トリクロロエタン、テルラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼンなどのハロゲン含有炭化水素系溶媒、ジイソプロピルエーテル、ジブチルエーテル、1,4-ジオキサン、エチレングリコールジエチルエーテルなどのエーテル系溶媒などが挙げられ、中でもトルエン、1,2-ジクロロエタンおよび1,4-ジオキサンが好ましく、これらの中でも1,4-ジオキサンが特に好20 ましい。

有機溶媒の使用量は特に限定されないが、ジオール系化合物に対して 35~70重量%程度が好ましい。

反応は、ジオール系化合物と有機溶媒との混合物を攪拌しながら、これにオキシ塩化リンを添加して行うのが好ましい。

25 反応温度は0~100℃、好ましくは40~80℃である。反応温度 が0℃未満の場合には、反応が充分に進行しないので好ましくない。ま WO 01/04204 PCT/JP00/04004

た、反応温度が100℃を超える場合には、生成する化合物(II)が分 解して着色することがあるので好ましくない。

反応時間は、反応温度などの条件により異なるが、通常3~8時間程 度である。

 副生する塩化水素は、公知の方法、例えば窒素トッピング法のような 減圧処理により除去することができる。減圧処理の条件は有機溶媒が還 流しない程度が好ましく、例えば、40~90℃、好ましくは50~8 0℃で圧力200~500Torrの範囲である。

次に、化合物 (II) と、理論量~理論量の20重量%過剰量 (好まし 10 くは理論量の10~15重量%過剰量)のアルコールとを反応させて、 リン酸エステル (I) を得る。

アルコールの理論量は、次式から算出される。

15

25

アルコールの理論量= (A×B×C) / (35.5×100)

〔式中、Aは化合物(II)の重量(g)であり、Bは化合物(II)の塩素含有率(重量%)であり、Cはアルコールの分子量である〕

アルコールの使用量が理論量未満の場合には反応が完結せず、またアルコールの使用量が20重量%を超える場合には未反応のアルコールが 反応系内に残存するので、経済的に好ましくない。

アルコールとしては、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-20 プロパノール、1-ブタノール、sec-ブタノール、 tert-ブタノール、ヘキサノール、ヘプタノール、オクタノールが挙げられ、中でも1-プロパノールおよび1-ブタノールが特に好ましい。

この反応は、反応時間を短縮し、かつ生成物の純度を向上させるため に、酸受容体 (例えば、トリエチルアミン、トリブチルアミンなどの塩 基) の存在下で行うのが好ましい。

酸受容体の使用量は、理論量~理論量の20重量%過剰量の範囲内、

好ましくは10~15重量%過剰量の範囲内である。

酸受容体の理論量は、次式から算出される。

酸受容体の理論量= (A×B×D) / (35.5×100)

〔式中、Aは化合物 (II) の重量 (g) であり、Bは化合物 (II) の塩 5 素含有率 (重量%) であり、Dは酸受容体の分子量である〕

反応は前段の反応から連続して行うことができ、具体的には、有機溶媒を含む前段の反応混合物を攪拌しながら、アルコール、あるいはアルコールと酸受容体との混合物を添加すればよい。

反応温度は20~60℃、好ましくは30~50℃である。反応温度 10 が20℃未満の場合には、反応の進行が非常に遅くなるので好ましくない。また、反応温度が60℃を超える場合には、副反応が起こり、生成 物の純度が低下するなどの悪影響が考えられるので好ましくない。

反応時間は、反応温度などの条件により異なるが、通常2~7時間程 度である。

15 この反応により副生する塩化水素は、酸受容体に取り込まれて塩を形成する。この塩は、反応終了後に反応混合物を洗浄することにより除去することができる。具体的には、得られた反応混合物を反応容器から回収し、洗浄、脱水などの精製処理を行う。残留水や低沸点成分を除去するためには、精製処理として水蒸気蒸留を行うのが好ましい。

20 (製造方法2)

まず、アルコールと、アルコール1モルに対して1.0~5.0モル (好ましくは1.1~3.0モル) のオキシ塩化リンとを反応させて、一般式 (III) :

$$\begin{array}{c}
C1 & O \\
PO-R_3 & (III)
\end{array}$$

WO 01/04204 PCT/JP00/04004

(式中、 R_3 は炭素数 $1\sim 20$ のアルキル基を示す)で表される化合物を得る。

アルコールとしては、前記の製造方法1と同様のものが挙げられる。 - 反応温度は $-2.0 \sim 5.0 \, ^{\circ}$ C、好ましくは $-1.0 \sim 2.0 \, ^{\circ}$ Cである。反応

- 5 温度が-20℃未満の場合には、反応が充分に進行しないので好ましくない。また、反応温度が50℃を超える場合には、副生する塩化水素とアルコールが反応して、塩化アルキル(アルキルクロリド)と水が生成し、この水により化合物(III)およびオキシ塩化リンの分解が起こるので好ましくない。
- 10 反応時間は、反応温度などの条件により異なるが、通常3~8時間程度である。

副生する塩化水素は、公知の方法、例えば窒素トッピング法のような 減圧処理により除去することができる。減圧処理の条件は、例えば、0~20 $^{\circ}$ C、好ましくは5~10 $^{\circ}$ Cで圧力10~200101010

化合物 (III) の分解温度が約50℃であるので、上記の温度条件は すべて50℃以下に設定するのが好ましい。

また、系内に残存する未反応のオキシ塩化リンは、次工程の反応においてジオール系化合物と副反応を起こして、生成物の純度が低下するなどの問題があるので、反応終了後に未反応のオキシ塩化リンを除去するのが好ましい。

次に、化合物 (III) と、理論量~理論量の20重量%過剰量 (好ましくは理論量の10~15重量%過剰量) ジオール系化合物とを反応させて、リン酸エステル (I) を得る。

25 ジオール系化合物の理論量は、次式から算出される。 ジオール系化合物の理論量

15

20



 $= (E \times F \times G) / [2 \times (35.5 \times 100)]$

〔式中、Eは化合物 (III) の重量 (g) であり、Fは化合物 (III) の塩素含有率 (重量%) であり、Gはジオール系化合物の分子量である〕

ジオール系化合物が固体であるため、反応を円滑に進め、生成物の結 5 晶化による取扱い難さを防ぐ意味で、この反応は有機溶媒中で行うのが 好ましい。

ジオール系化合物および有機溶媒としては、前記の製造方法 1 と同様のものが挙げられる。有機溶媒の使用量は特に限定されないが、ジオール系化合物に対して35~70重量%程度が好ましい。

10 また、この反応は、反応時間を短縮し、かつ生成物の純度を向上させるために、前記の製造方法1と同様の酸受容体の存在下で行うのが好ましい。

酸受容体の使用量は、理論量~理論量の20重量%過剰量の範囲内、 好ましくは10~15重量%過剰量の範囲である。

15 該酸受容体の理論量は、次式から算出される。

酸受容体の理論量= (E×F×C) / (35.5×100)

〔式中、Eは化合物(III)の重量(g)であり、Fは化合物(III)の 塩素含有率(重量%)であり、Cはアルコールの分子量である〕

反応温度は20~60℃、好ましくは30~50℃である。反応温度 20 が20℃未満の場合には、反応の進行が非常に遅くなるので好ましくない。また、反応温度が60℃を超える場合には、副反応が起こり、生成 物の純度が低下するなどの悪影響が考えられるので好ましくない。

反応時間は、反応温度などの条件により異なるが、通常 2 ~ 7 時間程度である。

25 この反応により副生する塩化水素は、酸受容体に取り込まれて塩を形成する。この塩は、反応終了後に反応混合物を洗浄することにより除去

WO 01/04204 PCT/JP00/04004

することができる。具体的には、得られた反応混合物を反応容器から回収し、洗浄、脱水などの精製処理を行う。残留水や低沸点成分を除去するためには、精製処理として水蒸気蒸留を行うのが好ましい。

5 実施例

本発明を以下の製造例および実施例によりさらに具体的に説明するが、 これらの実施例は本発明の範囲を限定するものではない。なお、実施例 において特に断りのない限り「部」はすべて「重量部」を示す。

10 製造例1

25

攪拌機、温度計、滴下漏斗および水スクラバーを連結したコンデンサーを備えた1リットルの4つロフラスコに、ネオペンチルグリコール204.0g(2.0モル)、1,4-ジオキサン102.0g(ネオペンチルグリコールに対して50重量%)を充填し、攪拌した。次いで、恒温装置を用いて混合物を50℃に加熱し、この温度を維持しながら、滴下漏斗からオキシ塩化リン307.0g(2.0モル)を3時間かけて添加した。添加後、反応混合物を50℃で2時間攪拌し、さらに反応混合物を加熱して1時間かけて75℃にした。次いで、真空度250Torr、75℃で2時間かけて副生した塩化水素を除去して、R₁およびR2がメチルである化合物(II) 471.0gを得た。この化合物の塩素含有量は15.07%であった。

次いで、上記の反応混合物を50 °Cに冷却し、この温度を維持しながら、この反応混合物にトリエチルアミン222.1g(2.2 モル)と1-プロパノール132.0g(2.2 モル)との混合溶液354.1gを2時間かけて添加した。添加後、反応混合物の温度を50 °Cに維持しながら3 時間攪拌した。



得られた反応混合物を水洗してトリエチルアミン塩酸塩を除去し、さらに加熱真空下で水および低沸点成分を除去して、淡黄色の液体395. 2gを得た。

得られた生成物を元素分析し、粘度を測定した。

5 生成物は、下記の化学構造を有する化合物(1)であった。 生成物の元素の分析値とその理論値、粘度および収率を表1に示す。

製造例 2

1-プロパノールに代えて1-ブタノール162.8g(2.2モル)

10 を使用する以外は製造例 1 と同様にして、淡黄色の液体 4 2 1. 8 gを 得た。

得られた生成物について、製造例1と同様にして、元素分析と粘度測 定を行った。

生成物は、下記の化学構造を有する化合物(2)であった。

15 生成物の元素の分析値とその理論値、粘度および収率を表1に示す。

表 1

	組成		: 分析値 : 理論値	粘度 (cps/25℃)	収率 (%)
	P %	С%	Н%		
化合物(1)	14.88	46.14	8.16	21	95.0
	14.90	46.15	8.17		
化合物(2)	13.94	48.63	8.54	26	95.0
	13.96	48.65	8.56		

15



以下の実施例では、本発明の難燃剤である化合物(1)および化合物(2)に加えて、比較例として公知のハロゲンを含有しない難燃剤である化合物(A)および化合物(B)について、それらの性能を評価した。

化合物(A):リン酸トリエチル

化合物(B):リン酸クレジルジフェニル

実施例1 (難燃剤の耐加水分解性能の評価)

製造例1および製造例2でそれぞれ得られた化合物(1)および化合物(2)、ならびに化合物(A)および化合物(B)について、耐加水10 分解性能の評価として、ASTM D-2169およびMIL III-19457に準じて酸価を測定した。

耐圧試料瓶に試料として試験化合物75gと蒸留水25gを入れて密栓した後、予め93℃に調整した加水分解装置(1分間に5回転して試料瓶中の内容物を混合する機能を有する)に耐圧試料瓶を取り付け、同温度で48時間保持し、室温まで冷却した。

耐圧試料瓶中の混合物を分液漏斗に移し、静置して水相を回収した。 次いで、油相に洗浄水として蒸留水約100gを加えて軽く振盪した後、 静置して水相を回収した。分離した水相を最初の水相と混合した。同様 にして、さらに洗浄水が中性になるまで洗浄操作を繰り返した。

20 回収されたすべての水相(洗浄水を含む)の全酸価を測定した。 各化合物について得られた結果を表2に示す。

表 2

難燃剤	全酸価 (KOH mg/g)
化合物(1)	3 2
化合物(2)	2 7
化合物(A)	8 3 7
化合物(B)	0.2

実施例2 (難燃性軟質ポリウレタンフォームの製造)

配合成分

ポリオール (商品名:MN-3050 ONE、三井化学株式会社製)

100部

5 ジイソシアネート(商品名:TDI 80/20、三井化学株式会社製)

59.5部

シリコン油(商品名:F-242T、信越化学株式会社製)

1.2部

錫系触媒 (商品名: スタン BL、三共有機合成株式会社製)

0.3部

10 アミン系触媒(商品名:カオライザーNo.1、花王株式会社製)

0.1部

水

5.0部

ジクロロメタン

5.0部

難燃剤 (ポリオールとジイソシアネートとの合計量 1 0 0 重量部に対 15 する配合量、表 3 に記載)

上記の配合成分を用い、次のようにワンショット法により軟質ウレタン発泡体を製造した。

まず、ポリオール、シリコン油、触媒、ジクロロメタン、水および難燃剤を配合し、回転数3000rpmの攪拌機で1分間攪拌して均一に20 混和した。次いで、ジイソシアネートを加えてさらに回転数3000rpmで5~7秒間攪拌後、内容物を断面が正方形のボール箱に手早く注いだ。直ちに発泡が起こり、数分後に最大容積に達した。この発泡体を80℃の炉内で30分間硬化させた。得られた発泡体は白色軟質気泡型セル組織であった。



実施例3 (難燃性硬質ポリウレタンフォームの製造)

配合成分

ポリオール (商品名: SU-464、三井化学株式会社製)

100部

ジイソシアネート (商品名:M-200 、三井化学株式会社製)

5

192.2部

シリコン油 (商品名: SH-193、東レ・ダウコーニング・シリコーン株式会社製) 2.0部

錫系触媒 (商品名:スタンBL、三共有機合成株式会社製)

0.1部

10 アミン系触媒 (商品名:カオライザーNo.3、花王株式会社製)

0.7部

水

20

5.0部

難燃剤(ポリオールとジイソシアネートとの合計量100重量部に対する配合量、表4に記載)

15 上記の配合成分を用い、次のようにワンショット法により硬質ウレタン発泡体を製造した。

まず、ボリオール、シリコン油、触媒、水および難燃剤を配合し、回転数3000rpmの攪拌機で1分間攪拌して均一に混和した。次いで、ジイソシアネートを加えてさらに回転数3000rpmで5~7秒間攪拌後、内容物を断面が正方形のボール箱に手早く注いだ。直ちに発泡が起こり、数分後に最大容積に達した。得られた発泡体は白色硬質気泡型セル組織であった。

実施例4 (難燃性軟質ポリウレタンフォームの性能評価)

25 実施例2で得られた難燃性軟質ポリウレタンフォームの物性を下記の 規格または操作により測定した。 ①密度(kg/m³)

JIS K-7222に準じて測定した。

②25%硬さ(kgf)

JIS K-6401に準じて測定した。

5 ③難燃性

10

15

FMVSS-302 (軟質ポリウレタンフォームに対する難燃性試験方法) に準じて評価した。

評価基準

NB:標線A (着火点より38mm) 以内で自消

SE:標線A~標線B(着火点より38~292mm)で自消

BN:標線B (着火点より292mm) 以上燃焼

④変色性

試験片 (5×5×1 c m³) を 1 2 0 ℃の恒温槽内に入れ、 2 4 時間 保持した。その後、試料の変色度合い (Y I) を色差計を用いて測定し て変色性とした。

得られた結果を表3に示す。

表 3

評価番号	難燃剤	使用量* (部)	密 度 (kg/m³)	25%硬さ (kgf)	難燃性	変色性 (YI)
1	化合物 (1)	5.6 (9)	2 5	1 0	NΒ	3 0
2	化合物 (2)	6.3 (10)	2 5	1 0	NB	3 0
3	化合物 (A)	6.3 (10)	2 5	1 0	SE	8 0
4	化合物 (B)	6.3	2 5	1 0	BN	3 0

*ポリオールとジイソシアネートとの合計量100重量部に対する配合量(ポリオール100重量部に対する配合量)

PCT/JP00/04004 WO 01/04204

実施例5 (難燃性硬質ポリウレタンフォームの性能評価)

実施例3で得られた難燃性硬質ポリウレタンフォームの物性を下記の 規格または操作により測定した。

①密度 (kg/m³)

JIS K-7222に準じて測定した。

②曲げ強度 (kgf/cm²)

JIS K-7220に準じてを測定した。

③難燃性

5

JIS A-9514 (硬質ポリウレタンフォームに対する難燃性

試験方法) に準じて測定した。 10

得られた結果を表4に示す。

表 4

評価番号	難燃剤	使用量* (部)	密 度 (kg/m³)	曲げ強度 (kgf/cm ²)	難燃性 (mm) 36.7
5	化合物 (1)	3.4	3 2	2	
6	化合物 (2)	4.1	3 2	2	38.6
7	化合物 (A)	2.7	3 2	2	39.6
8	化合物 (B)	4.1 (12)	3 2	2	全焼

*ポリオールとジイソシアネートとの合計量100重量部に対する 配合量 (ポリオール100重量部に対する配合量)

15

表3および表4の結果から、次のことがわかる。

①本発明の難燃剤は、従来のハロゲンを含有しない難燃剤に比べて少 量の添加で、樹脂本来の物性を低下させることなしに、優れた難燃性を 付与できる。

②本発明の樹脂組成物 (ポリウレタンフォーム) は、耐変色性に優れ 20



ている。

5

15

20

一般に、樹脂組成物の変色(着色)は、難燃剤自体が加水分解したときに生じる化合物によるものと考えられている。したがって、本発明の難燃剤の優れた耐加水分解性が樹脂組成物の変色の抑制に寄与しているものと考えられる。

本発明の難燃剤は、各種樹脂と混合したときに樹脂本来の物性を低下させることなしに、優れた難燃性を付与することができる。また、本発明の難燃剤はハロゲンを含まず、樹脂加工時や燃焼に際して有毒ガスを発生しないので、環境に対して負荷をかけることなく、人体に悪影響を与えない。

また、本発明の難燃剤は室温において低粘度の液体であり、樹脂への 分散性が良好で、特にポリウレタンに対して良好な相溶性を発揮する。 さらに、本発明の難燃剤は耐加水分解性にも優れているので、樹脂組成 物を変色させることがなく、耐久性を低下させることがない。

本発明の樹脂組成物は、VTR、分電盤、テレビ、エアコンなどの家庭電化製品、パソコン、プリンター、ファクシミリ、電話などのOA機器、コネクタ、スイッチ、モーター部品などの電気材料、コンソールボクス、座席クッションなどの自動車部品、ならびに建築材料などに好適に使用することができる。

請求の範囲

1. 一般式(I):

$$\begin{array}{c}
R_1 \setminus C H_2 O \setminus_{\parallel} O \\
C \setminus_{C H_2 O} P O - R_3
\end{array} \qquad (I)$$

- 5 (式中、 R_1 および R_2 は同一または異なって、炭素数 $1 \sim 6$ のアルキル基を示し、 R_3 は炭素数 $1 \sim 2$ 0 のアルキル基を示す) で表されるリン酸エステルを含有する樹脂用難燃剤。
 - 2. 一般式 (I) における R_1 および R_2 が、炭素数 $1\sim 4$ の直鎖状または分岐鎖状のアルキル基である請求項 1 に記載の樹脂用難燃剤。
- 10 3. 一般式 (I) における R_3 が、炭素数 $1 \sim 4$ の直鎖状または分岐 鎖状のアルキル基である請求項 1 または 2 に記載の樹脂用難燃剤。
 - 4. 一般式(I)における R_1 および R_2 がメチル基であり、 R_3 が n-プロビル基または n-プチル基である請求項 1 に記載の樹脂用難燃剤。
- 5. 樹脂に、難燃剤として請求項1または2に記載の樹脂用難燃剤を 15 含有してなる難燃性樹脂組成物。
 - 6. 樹脂が、ハロゲンを含有しない樹脂である請求項5に記載の難燃 性樹脂組成物。
 - 7. 樹脂が、ポリウレタンである請求項6に記載の難燃性樹脂組成物。
- 8. 樹脂用難燃剤が、樹脂100重量部に対して0.1~50重量部 20 配合されてなる請求項5~7のいずれか1つに記載の難燃性樹脂組成物。



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 \bigcirc

International application No.

PCT/JP00/04004

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl ⁷ C08K5/527, C08L101/00, C09K21/12						
According to	According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC					
B. FIELDS	SEARCHED					
	Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl ⁷ C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/16, C09K21/12					
Documentati	Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched					
	ata base consulted during the international search (name ONLINE	of data base and, where practicable, sear	rch terms used)			
G POCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT					
			Relevant to claim No.			
Category*	Citation of document, with indication, where app	ropriate, of the relevant passages	ACIEVAIII 10 CIAIIII 190.			
A	EP, 779332, A1 (HOECHST AG), 08 July, 1997 (08.07.97), Claims & JP, 09-176376, A Claims	1-8				
A	& US, 5750601, A JP, 6-321974, A (Daihachi Chemic 22 November, 1994 (22.11.94),	1-8				
	Claims & EP, 617042, Al & US, 54017	1-8				
A	JP, 52-89685, A (Michigan Chem. 27 July, 1977 (27.07.77), Claims & US, 4049617, A & DE, 27018	1 0				
A	JP, 63-95249, A (Mitsubishi Ray 26 April, 1988 (26.04.88), Claims (Family: none)	1-8				
Furthe	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.				
* Specia "A" docum consid "E" earlier date "L" docum cited t specia "O" docum means "P" docum	al categories of cited documents: nent defining the general state of the art which is not ered to be of particular relevance document but published on or after the international filing ment which may throw doubts on priority claim(s) or which is o establish the publication date of another citation or other al reason (as specified) ment referring to an oral disclosure, use, exhibition or other inent published prior to the international filing date but later	"T" later document published after the integrity date and not in conflict with tunderstand the principle or theory und document of particular relevance; the considered novel or cannot be considered to the document is taken alon document of particular relevance; the considered to involve an inventive ste combined with one or more other succombination being obvious to a perso document member of the same patent	he application but cited to derlying the invention claimed invention cannot be ered to involve an inventive e claimed invention cannot be ep when the document is h documents, such in skilled in the art			
Date of the	actual completion of the international search June, 2000 (30.06.00)	Date of mailing of the international sea 11 July, 2000 (11.0	rch report 7.00)			
Name and Jap	mailing address of the ISA/ anese Patent Office	Authorized officer				
Facsimile 1	No.	Telephone No.				

			>
· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		CHARLEST AND CARE CHARLEST CONTROL	Control of the Contro
			t,
			e e
	•		
			Þ.



国際出願番号 PCT/JP00/04004

					
A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) Int. Cl' C08K5/527, C08L101/00, C09K21/12					
B. 調査を行	<u> </u>				
調査を行った	表小限資料(国際特許分類(IPC))				
Int. Cl	' C08K3/00-13/08, C08L1	/00-101/16, C09K21/	´1 2		
最小限资料以外	外の資料で調査を行った分野に含まれるもの				
国際調査で使用である。	用した電子データベース(データベースの名称、 N L I N E	調査に使用した用語)			
	ると認められる文献				
引用文献の カテゴリー*	 引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	・きけ その朋連士を第一の事子	関連する 請求の笕囲の番号		
A	EP, 779332, A1 (HOE) 997 (08. 07. 97), 特許請求の範囲 & JP, 09-176376, A, & US, 5750601, A	CHST AG) 8.7月.1	1-8		
A	JP, 6-321974, A (大八イ月. 1994 (22. 11. 94), 特許請求の範囲 & EP, 617042, A1 &		1 – 8		
X C欄の続き	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	紙を参照。		
もの 「E」国際出版 以後に在 「L」優先権 日本献(E で、「O」口頭に。	のカテゴリー 車のある文献ではなく、一般的技術水準を示す 質日前の出願または特許であるが、国際出願日 公表されたもの 主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 くは他の特別な理由を確立するために引用する 理由を付す) よる開示、使用、展示等に言及する文献 質日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献 に出願と矛盾するものではなく、論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当の新規性又は進歩性がないと考えられる文献との、当業者にとってしまって進歩性がないと考えられる「&」同一パテントファミリー文献	発明の原理又は理 当該文献のみで発明 さられるもの 当該文献と他の1以 当明である組合せに		
国際調査を完了	了した日 30.06.00	国際調査報告の発送日	.00		
日本国	D名称及びあて先 国特許庁(ISA/JP) 郵便番号100-8915	特許庁審査官(権限のある職員) 藤本 保 日	4J 9552		
	第千代田区霞が関三丁目4番3号	電話番号 03-3581-1101	内線 3495		

C (続き).	関連すると認められる文献	, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,
引用文献の		関連する 請求の範囲の番号
<i>カテゴリー</i> *。 A	JP, 52-89685, A (ミシガン・ケミカル・コーポレイション) 27. 7月. 1977 (27. 07. 77), 特許請求の範囲 & US, 4049617, A & DE, 2701856, A	1-8
A	JP, 63-95249, A (三菱レイヨン株式会社) 26. 4 月. 1988 (26. 04. 88), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-8

		1時 2000年 00月 10日 (10.00.2000) 不曜日 11時 21月 20秒
0	受理官庁記入欄	
0-1	国際出願番号.	
0-2	国際出願日	
		09/00/808
0-3	(受付印)	
	- 	<u></u>
0-4	様式-PCT/RO/101	
	この特許協力条約に基づく国際出願願書は、	
0-4-1	田願願音は、 右記によって作成された。	PCT-EASY Version 2.90
	The contract of the contract o	(updated 10.05.2000)
0-5	申立て	(upuated 10.00.2000)
	出願人は、この国際出願が特許	•
	協力条約に従って処理されるこ	
0-6	│とを請求する。 │出願人によって指定された受理	
	官庁	日本国特許庁(RO/JP)
0-7	出願人又は代理人の書類記号	DC3378PC
T	発明の名称	樹脂用難燃剤およびそれを含有する難燃性樹脂組成物
TI	出願人	
11-1	この欄に記載した者は	出願人である (applicant only)
11-2	右の指定国についての出願人で	
II-4ja	ある。	except US)
II-4en	名称	大八化学工業株式会社
II-5ja	Name	DAIHACHI CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.
II OJA	あて名:	541-0046 日本国
		大阪府 大阪市中央区
II-5en	Address:	平野町1丁目8番13号 平野町八千代ビル
	nddr css.	Hiranomachi Yachiyo Bldg., 8-13, Hiranomachi 1-chome, chuo-ku,
		Osaka-shi, Osaka 541-0046
	,	Japan
I I - 6	国籍 (国名)	日本国 JP
11-7	住所 (国名)	日本国 JP
11-8	電話番号	06-6201-1451
11-9	ファクシミリ番号	06-6201-1458
III-1	その他の出願人又は発明者	
III-1-1	この欄に記載した者は	出願人及び発明者である(applicant and inventor)
III-1-2	右の指定国についての出願人で	米国のみ (US only)
111-1-4.ja	ある。 氏名(姓名)	徳安 範昭
III-1-4er	Name (LAST, First)	1芯女
III-1-5ja	あて名:	10KUTASU, NOTTAKT 477-0032 日本国
•	100 - 71.	477-0032 日本国 愛知県 東海市
		変ط県 泉海印 加木屋町小家ノ脇5-420
111-1-5er	Address:	万元
		Tokai-shi, Aichi 477-0032
		Japan
III-1-6	国籍(国名)	日本国 JP
111-1-7	住所(国名)	日本国 JP
	<u> </u>	LH'T'ES VI

The supplies the s					
			1		* '
			'		` •
		•			



特許協力条約に基づく国際出願顧書 原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月15日 (15.06.2000) 木曜日 11時27分20秒

111-2-1
111-2-4
#国のみ(US only)
加1-2-4Ja
#####################
111-2-5an Name (LAST, First)
#####################
愛知県 知多郡 東浦町石浜芦間 1 0 — 1 110-1。
型知県 知多郡 東浦町石浜芦間 1 0 - 1 10-1, Ishihama Ashima, Higashiura-cho, Chita-gun, Aichi 470-2103 Japan 日本国 JP 日本国 大阪府 大阪市北区 西天満 5 丁目 1 一 3 南森町パークビル MINAMIMORIMACHI PARK BLDG., 1-3, Nishitenma 5-chome, Kita-ku, Osaka-shi, Osaka 530-0047 Japan 06-6365-0718 06-6365-0718 06-6365-0718 06-6365-0718 07-2 国内特許 (他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載する。) ロ内特許(他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載する。) ロ内特許(他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載する。) アマ 国内特許(他の種類の保護とは取扱いを 求める場合には括弧内に記載する。) アンマ 国内特許(他の種類の保護とび取扱いを 求める場合には括弧内に記載する。) ローロッパ特許条約と特許協力条約の締約国で CN JP US CN JP US
Till-2-5en Address: 東浦町石浜芦間 1 0 - 1 10-1, Ishihama Ashima, Higashiura-cho, Chita-gun, Aichi 470-2103 Japan 日本国 JP
10-1, Ishihama Ashima, Higashiura-cho, Chita-gun, Aichi 470-2103 Japan 日本国 JP 日本国の者は国際機関において方記のできく出願人のために行動する。
111-2-6 国籍 (国名)
III-2-6
111-2-6 国籍 (国名) 日本国 JP 日本国 JP
111-2-6 国籍 (国名) 日本国 JP 日本国 JP
111-2-7 住所 (国名) 日本国 JP
で記のでは共通の代表者、通知
Part
V-1-1 ja IV-1-2 ja IV-1-3 IV-1-3 IV-1-4 IV-1-4 IV-1-4 IV-1-4 IV-1-4 IV-1-5
IV-1-1ja IV-1-2m IV-1-2m IV-1-2m IV-1-2m IV-1-2m IV-1-2m IV-1-2m IV-1-2m IV-1-2m IV-1-3m 電話番号 IV-1-3 電話番号 IV-1-4 IV-1-4 IV-1-4 IV-1-2m IV-1-3 IV-1-3 IV-1-3 IV-1-3 IV-1-3 IV-1-3 IV-1-4 IV-1-2m IV-1-3 IV-1-3 IV-1-3 IV-1-3 IV-1-3 IV-1-4 IV-1-2m IV-1-3 IV-1-3
IV-1-i_ja IV-1-ien iV-1-ien iV-1-ien iV-1-ien iV-1-2ia iV-1-2ia iV-1-2en Address:
IV-1-Ja IV-1-Ja IV-1-Ja IV-1-Ja IV-1-Zan Name (LAST, First) あて名: Sin-Dol47 Dasa 大阪府 大阪市北区 西天満5丁目1-3 南森町パークビル MINAMIMORIMACHI PARK BLDG., 1-3, Nishitenma 5-chome, Kita-ku, Osaka-shi, Osaka 530-0047 Japan O6-6365-0718 O6-6365-9279 IV-1-4 IV-1-4 IV-1-2 IV-1-4 IV-1-2 IV-1-4 IV-1-3 IV-1-4 IV-1
IV-1-len IV-1-2 IV-1-2 IV-1-2 IV-1-2 IV-1-2 IV-1-2 IV-1-2 IV-1-2 IV-1-2 Address:
Name (LAST, First) あて名: NOGAWA, Shintaro 530-0047 日本国
IV-1-2ia あて名: 530-0047 日本国
IV-1-2en Address: 大阪市大阪市北区西天満5丁目1-3 南森町パークビル MINAMIMORIMACHI PARK BLDG., 1-3, Nishitenma 5-chome, Kita-ku, Osaka-shi, Osaka 530-0047 Japan 06-6365-0718 06-6365-0718 06-6365-9279
IV-1-2en Address: 西天満5丁目1-3 南森町パークビル MINAMIMORIMACHI PARK BLDG., 1-3, Nishitenma 5-chome, Kita-ku, Osaka-shi, Osaka 530-0047 Japan 06-6365-9279
IV-1-2en Address: 西天満5丁目1-3 南森町パークビル MINAMIMORIMACHI PARK BLDG., 1-3, Nishitenma 5-chome, Kita-ku, Osaka-shi, Osaka 530-0047 Japan 06-6365-9279
Note
1V-1-3
TV-1-3 電話番号 ファクシミリ番号 DSaka-shi, Osaka 530-0047 Japan
TV-1-3 では
1V-1-3
1V-1-3
V-1
V-1 国の指定 広域特許 (他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載する。) EP: AT BE CH&LI CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT MC NL PT SE 及びヨーロッパ特許条約と特許協力条約の締約国でる他の国(他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載する。) V-2 国内特許 (他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載する。) V-5 指定の確認の宣言 出願人は、上記の指定に加えて 規則4.9(b)のの規定に基づき、 特許協力条約のもとで認められる他の全ての国の指定を行う。 ただし、V-6欄に示した国の指定を行う。 ただし、V-6欄に示した国の指定を条件と していること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認 がなされる指定は、この期間 の経過時に、出願人によって取 り下げられたものとみなされる
V-1 広域特許
(他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載する。) V-2 国内特許 (他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載する。) V-5 指定の確認の宣言 出願人は、上記の指定に加えて、規則4.9(b)の規定に基づき、 特許協力条約のもとで認められる他の全ての国の指定を行う。 ただし、V-6欄に示した国の指定を除く。出願人は、これらの追加される指定が確認を条件としていること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、上島のとみなされるり下げられたものとみなされる
Race
Total
V-2 国内特許 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には括弧内に記載する。)
V-2
(他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載する。) V-5 指定の確認の宣言 出願人は、上記の指定に加えて、規則4.9(b)の規定に基づき、特許協力条約のもとで認められる他の全ての国の指定を行う。 ただし、V-6欄に示した国の指定を除く。出願人は、これらの追加されること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされる
求める場合には括弧内に記載する。)
Tome
1 1 1 1 1 1 1 1 1 1
出願人は、上記の指定に加えて 、規則4.9(b)の規定に基づき、 特許協力条約のもとで認められ る他の全ての国の指定を行う。 ただし、V-6欄に示した国の指 定を除く。出願人は、これらの 追加されること、並びに優先日か ら15月が経過す定は、その典問 の経過時に、出願人によって取 り下げられたものとみなされる
 規則4.9(b)の規定に基づき、 特許協力条約のもとで認められる他の全ての国の指定を行う。 ただし、V-6欄に示した国の指定を除く。出願人は、これらの追加される正定が確認を条件としていること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされる
特許協力条約のもとで認められる他の全ての国の指定を行う。 ただし、V-6欄に示した国の指定を除く。出願人は、これらの 追加される指定が確認を条件と していること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認 がなされない指定は、この期間 の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされる
る他の全ての国の指定を行う。 ただし、V-6欄に示した国の指 定を除く。出願人は、これらの 追加される指定が確認を条件と していること、並びに優先日か ら15月が経過する前にその確認 がなされない指定は、この期間 の経過時に、出願人によって取 り下げられたものとみなされる
ただし、V-6欄に示した国の指定を除く。出願人は、これらの追加される指定が確認を条件としていること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされる
定を除く。出願人は、これらの 追加される指定が確認を条件と していること、並びに優先日か ら15月が経過する前にその確認 がなされない指定は、この期間 の経過時に、出願人によって取 り下げられたものとみなされる
追加される指定が確認を条件と していること、並びに優先日か ら15月が経過する前にその確認 がなされない指定は、この期間 の経過時に、出願人によって取 り下げられたものとみなされる
していること、並びに優先日か ら15月が経過する前にその確認 がなされない指定は、この期間 の経過時に、出願人によって取 り下げられたものとみなされる
ら15月が経過する前にその確認 がなされない指定は、この期間 の経過時に、出願人によって取 り下げられたものとみなされる
がなされない指定は、この期間 の経過時に、出願人によって取 り下げられたものとみなされる
の経過時に、出願人によって取
り下げられたものとみなされる
リトけられたものとみなされる
ا ب المستمر من المستمر
ことを宣言する。
V-6 指定の確認から除かれる国 なし (NONE)
VI-1 先の国内出願に基づく優先権主
張
現場
現場

			,	· ·
illen :				
		•		
				•.



特許協力条約に基づく国際出願願書 原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月15日 (15.06.2000) 木曜日 11時27分20秒

VI-2	度火堤等的事业人。金子	T	
** *	優先権証明書送付の請求	1,,-	
	上記の先の出願のうち、右記の	VI-1	
	番号のものについては、出願書		
	類の認証暦本を作成し国際事務		
	類の認証謄本を作成し国際事務 局へ送付することを、受理官庁 に対して請求している。		
VII-1	特定された国際調査機関(ISA)		
VIII		日本国特許庁(ISA/JP)	
VIII-1	照合欄	用紙の板数	添付された電子データ
	願書	4	_
VIII-2	明細書	21	-
A111-3	請求の範囲	1	_
VIII-4	要約	1	dc3378pc.txt
VIII-5	図面	Ö	debot ope. txt
VIII-7	合計		
	1	27	
VIII-8	添付書類	添付	添付された電子データ
	手数料計算用紙	✓	-
VIII-9	別個の記名押印された委任状	✓	-
VIII-16	PCT-EASYディスク		フレキシブルディスク
VIII-17	その他	4中/ナナフ エ 米ケル/ / フ キロ ゾノナ	フレインフルノイスフ
		納付する手数料に相当す	i -
	·	<u>る</u> 特許印紙を貼付した書	İ
		面	
VIII-17	その他	国際事務局の口座への振	_
		込みを証明する書面	
VIII-17	その他	優先権書類送付請求書	_
VIII-18	要約書とともに提示する図の番	及几臣自然还门明小自	<u> </u>
	号		
VIII-19	国際出願の使用言語名:	日本語(Japanese)	and the second of the second o
IX-1	提出者の記名押印	HE COUPLINGS	
		医外部	
IX-1-1	氏名(姓名)	野河信太郎 民间区	
		受理官庁記入欄	
10-1			
10-1	国際出願として提出された書類		
10-2	の実際の受理の日		
10-2-1	図面:		
10-2-2	受理された		
10-2-2	不足図面がある		
10-3	国際出願として提出された書類		
	を補完する書類又は図面であってその後期間内に提出されたも		
	のの実際の受理の日(訂正日)	•	
10-4	性計功力を必体11を/2012 甘ス		
	付計場が栄約第11条(2)に基づ く必要な補完の期間内の受理の 日	4	
	「一日		
10-5		ISA/JP	
	直機関	ION/ OI	
10-6	調査手数料未払いにつき、国際		
	調査機関に調査用写しを送付し		
	ていない		

		Wederst service and	Company of the Company	
			1	• ` •
				4
			and the state of t	
			•	
			,	
· ·				
•				
•				

4/4

特許協力条約に基づく国際出願願書 原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月15日 (15.06.2000) 木曜日 11時27分20秒

DC3378PC

国際事務局記入欄

11-1	記録原本の受理の日	 	 		

erika erika erika er	professional designation in the second se	C. T. C.	
		3	
			٠٠
		and the state of t	
			•

INTERNATIONAL SEARCH REPORT



International application No.

PCT/JP00/04004

						
	A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl ⁷ C08K5/527, C08L101/00, C09K21/12					
According to	o International Patent Classification (IPC) or to both na	ational classification and IPC				
	S SEARCHED					
	ocumentation searched (classification system followed C1 ⁷ C08K3/00-13/08, C08L1/00-1					
Documentat	ion searched other than minimum documentation to the	extent that such documents are included	in the fields searched			
	ata base consulted during the international search (nam	e of data base and, where practicable, sea	rch terms used)			
CAS	ONLINE					
C. DOCUI	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT					
Category*	Citation of document, with indication, where ap	propriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.			
A	EP, 779332, A1 (HOECHST AG), 08 July, 1997 (08.07.97), Claims & JP, 09-176376, A Claims & US, 5750601, A		1-8			
Α	JP, 6-321974, A (Daihachi Chemic 22 November, 1994 (22.11.94), Claims & EP, 617042, Al & US, 5401	1-8				
A	JP, 52-89685, A (Michigan Chem. 27 July, 1977 (27.07.77), Claims & US, 4049617, A & DE, 27018	1-8				
A	JP, 63-95249, A (Mitsubishi Ray 26 April, 1988 (26.04.88), Claims (Family: none)	1-8				
Further	documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.				
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed Date of the actual completion of the international search 30 June, 2000 (30.06.00) "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention cannot considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art document member of the same patent family Date of mailing of the international search report 11 July, 2000 (11.07.00)						
	ailing address of the ISA/ nese Patent Office	Authorized officer				
Facsimile No	o	Telephone No.				

 $(C_{-})^{\frac{1}{2}}$

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/04004

		~~~				
A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) Int. Cl' C08K5/527, C08L101/00, C09K21/12						
B. 調査を	<u> </u>					
調査を行った	最小限資料(国際特許分類(IPC)) い C08K3/00-13/08, C08L	1/00-101/16, C09K21	/12			
最小限資料以	外の資料で調査を行った分野に含まれるもの					
国際調査で使り	用した電子データベース(データベースの名称 N L I N E	、調査に使用した用語)	·			
	ると認められる文献					
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連する	ときけ その関連する第一の表示	関連する 請求の範囲の番号			
A	EP, 779332, A1 (HOE 997 (08. 07. 97), 特許請求の範囲 & JP, 09-176376, A & US, 5750601, A	CHST AG) 8.7月.1	1 - 8			
A	JP, 6-321974, A (大八月, 1994 (22, 11, 94), 特許請求の範囲 & EP, 617042, A1 &	,	1-8			
Ⅺ C櫚の続き	にも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する8	川紙を参照。			
ものに 「E」国以後にに 以後先権し、 日本献頭に 「C」」 「O」	のカテゴリー 種のある文献ではなく、一般的技術水準を示す 種目前の出願または特許であるが、国際出願日 会表されたもの 三張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 は他の特別な理由を確立するために引用する 理由を付す) こる開示、使用、展示等に言及する文献 種目前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表 て出願と矛盾するものではなく 論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、 の新規性又は進歩性がないと考 「Y」特に関連のある文献であって、 上の文献との、当業者にとって よって進歩性がないと考えられ 「&」同一パテントファミリー文献	、発明の原理又は理 当該文献のみで発明 えられるもの 当該文献と他の1以 自明である組合せに			
国際調査を完了	した日 30.06.00	国際調査報告の発送日 1 1 2 0 7	.00			
日本国 野	名称及びあて先 特許庁(ISA/JP) 便番号100-8915 千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 藤本 保 月 電話番号 03-3581-1101	4 J 9552 内線 3495			

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/04004

C(続き).	関連すると認められる文献	Park
引用文献の カティブリー・**	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番
A	JP, 52-89685, A (ミシガン・ケミカル・コーポレイション) 27. 7月. 1977 (27. 07. 77), 特許請求の範囲 & US, 4049617, A & DE, 2701856, A JP, 63-95249, A (三菱レイヨン株式会社) 26. 4	1-8
	月. 1988 (26.04.88), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1 — 8
₩.		
		-
		·

PA NT COOPERATION TREAT

	From the INTERNATIONAL BUREAU
PCT	То:
NOTIFICATION OF ELECTION (PCT Rule 61.2) Date of mailing:	Commissioner US Department of Commerce United States Patent and Trademark Office, PCT 2011 South Clark Place Room CP2/5C24 Arlington, VA 22202 ETATS-UNIS D'AMERIQUE
18 January 2001 (18.01.01)	in its capacity as elected Office
International application No.: PCT/JP00/04004	Applicant's or agent's file reference: DC3378PC
International filing date: 19 June 2000 (19.06.00)	Priority date: 09 July 1999 (09.07.99)
Applicant: TOKUYASU, Noriaki et al	
1. The designated Office is hereby notified of its election made with the International preliminar 26 July 2000 (in a notice effecting later election filed with the International preliminar 26 July 2000 (The election X was was not was not made before the expiration of 19 months from the priority (Rule 32.2(b)).	y Examining Authority on:

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer:

J. Zahra

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

B eer		
	.d.	

│ 今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) │

EP · (S)

出願人又は代理人

PCT

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条) [PCT18条、PCT規則43、44]

の書類記号 DC3378PC			及び下記	15を参照すること。
国際出願番号 PCT/JP00/04004	国際出願日(日.月.年)	19.	06.00	優先日 (日.月.年) 09.07.99
出願人(氏名又は名称) 大八化学	L業株式会社			
国際調査機関が作成したこの国際調査 この写しは国際事務局にも送付される		規則第41	l条(PCT1	8条)の規定に従い出願人に送付する。
この国際調査報告は、全部で3	ページであ	る。	,	
この調査報告に引用された先行打	支術文献の写し	も添付さ	れている。	
1. 国際調査報告の基礎 a. 言語は、下記に示す場合を除く この国際調査機関に提出さ				
b. この国際出願は、ヌクレオチト この国際出願に含まれる書			んでおり、次の	の配列表に基づき国際調査を行った。
□ この国際出願と共に提出さ	れたフレキシブ	'ルディ	スクによる配列	刊表
□ 出願後に、この国際調査機	関に提出された	書面に。	よる配列表	
□ 出願後に、この国際調査機	関に提出された	フレキ	ンブルディスク	7による配列表
□ 出願後に提出した書面によ 書の提出があった。	る配列表が出願	時におり	ける国際出願の	D開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述
	た配列とフレキ	・シブルラ	ディスクによる	の配列表に記録した配列が同一である旨の陳述
2. 請求の範囲の一部の調査が	『できない(第	I 欄参照		
3. 発明の単一性が欠如してい	ゝる(第Ⅱ欄参用	照)。		
4. 発明の名称は 🛛 出願	重人が提出した を	ものを承	認する。	
□ 次に	に示すように国際	祭調査機	関が作成した。	3
5. 要約は 🗓 出願	賃人が提出した も	ものを承	認する。	
国際		戊した。	出願人は、この	則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により の国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこ できる。
6. 要約書とともに公表される図は、				. :
第 図とする。 🗌 出願	【人が示したと≯	おりであ	る。	区 なし
□ 出願	人は図を示され	なかった	٥	
□ 本図	は発明の特徴を	を一層よ	く表している。	· .

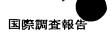
						'
	•					
		:	·			
		:				
					,	
e de la companya de l						
Production of the state of the				,		
		•			•	
•					•	•
					•	
	•					
•						
			•		•	
·						•
	*					
					•	
·						
•						
	•					
		,				
		•		•		
	•					
			•			

- 3



A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))	
Int. Cl' C08K5/527, C08L101/00, C09K21/1	2
B. 調査を行った分野 (国際体験 / I.D.C.)	
調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC)) Int. Cl' C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/1	6, C09K21/12
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの	
国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語 CAS ONLINE	;)
C. 関連すると認められる文献	
引用文献の	関連する
カテゴリー* 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する	箇所の表示 請求の範囲の番号
EP, 779332, A1 (HOECHST AG) 997 (08.07.97), A、特許請求の範囲 & JP, 09-176376, A, 特許請求の範囲 & US, 5750601, A	8.7月.1
JP, 6-321974, A (大八化学工業株式会社) 月. 1994 (22. 11. 94), 格許請求の範囲 & EP, 617042, A1 & US, 5401	1 - 8
X C欄の続きにも文献が列挙されている。	マミリーに関する別紙を参照。
もの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 論の理解のたる以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する「Y」特に関連のある文献(理由を付す) 「大」で表述との、	は優先日後に公表された文献であってするものではなく、発明の原理又は理めに引用するものる文献であって、当該文献のみで発明進歩性がないと考えられるものる文献であって、当該文献と他の1以、当業者にとって自明である組合せにがないと考えられるもの
国際調査を完了した日 30.06.00 国際調査報告の発送	1 1 07.00
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 電話番号 03-3:	のある職員) (4 月 9552) (5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 9 5

. • .



国際出願番号 TCT/JP00/04004

<u>C(続き).</u> 引用文献の カテゴリー*	関連すると認められる文献 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号				
A	JP, 52-89685, A (ミシガン・ケミカル・コーポレイション) 27. 7月. 1977 (27. 07. 77), 特許請求の範囲 & US, 4049617, A & DE, 2701856, A	1 - 8				
A	JP, 63-95249, A (三菱レイヨン株式会社) 26. 4月. 1988 (26. 04. 88), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1 – 8				
·						
`						

E compartment of the many process

.

•

.

•.

PASNT COOPERATION TREAT

PCT

NOTIFICATION OF TRANSMITTAL OF COPIES OF TRANSLATION OF THE INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Rule 72.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

NOGAWA, Shintaro Minamimorimachi Park Bldg. 1-3, Nishitenma 5-chome, Kita-ku Osaka-shi, Osaka 530-0047 JAPON

Date of mailing (day/month/year)

06 December 2001 (06.12.01)

Applicant's or agent's file reference

DC3378PC / HS

International application No.

PCT/JP00/04004

IMPORTANT NOTIFICATION

International filing date (day/month/year)

19 June 2000 (19.06.00)

Applicant

DAIHACHI CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD. et al

1. Transmittal of the translation to the applicant.

The International Bureau transmits herewith a copy of the English translation made by the International Bureau of the international preliminary examination report established by the International Preliminary Examining Authority.

2. Transmittal of the copy of the translation to the elected Offices.

The International Bureau notifies the applicant that copies of that translation have been transmitted to the following elected Offices requiring such translation:

EP,CN,US

The following elected Offices, having waived the requirement for such a transmittal at this time, will receive copies of that translation from the International Bureau only upon their request:

JΡ

3. Reminder regarding translation into (one of) the official language(s) of the elected Office(s).

The applicant is reminded that, where a translation of the international application must be furnished to an elected Office, that translation must contain a translation of any annexes to the international preliminary examination report.

It is the applicant's responsibility to prepare and furnish such translation directly to each elected Office concerned (Rule 74.1). See Volume II of the PCT Applicant's Guide for further details.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Eliott PERETTI

Telephone No. (41-22) 338.83.38

Form PCT/IB/338 (July 1996)

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

<u> </u>	

4 Trainslation

OATENT COOPERATION TREA

\mathbb{PCT}

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference DC3378PC	FOR FURTHER ACTIO		tionofTransmittalofInternational Preliminary n Report (Form PCT/IPEA/416)					
International application No.	International filing date (day	v/month/year)	Priority date (day/month/year)					
PCT/JP00/04004	19 June 2000 (19	.06.00)	09 July 1999 (09.07.99)					
	International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08K 5/527, C08L 101/00, C09K 21/12							
Applicant DAIH.	Applicant DAIHACHI CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.							
 This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36. This REPORT consists of a total of								
3. This report contains indications relat	ting to the following items:							
Basis of the report								
II Priority								
III Non-establishment o	of opinion with regard to nove	lty, inventive st	ep and industrial applicability					
Lack of unity of inve	ention							
Reasoned statement	under Article 35(2) with rega	rd to novelty, in	ventive step or industrial applicability;					
citations and explana	ations supporting such statement	ent						
VI Certain documents c	ited		•					
VII Certain defects in the	e international application							
VIII Certain observations	s on the international applicati	on						
Date of submission of the demand	Date	of completion o	of this report					
26 July 2000 (26.07.0	00)	21 A	August 2000 (21.08.2000)					
Name and mailing address of the IPEA/JP	Auth	Authorized officer						
Faccimile No.	Tala	Telephone No.						

			
• .			
• -			



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

_	\		_
1	dional	application	No
`	_		

PCT/JP00/04004

-		•	port	
1.	With	-	the elements of the international application:*	
	\boxtimes	the inte	rnational application as originally filed	
		the desc	cription:	
		pages	, as originally file	d
		pages	, filed with the demar	nd
		pages	, filed with the letter of	
		the clair		_
	ш			
		pages .	, as originally file	a
		pages .	, as amended (together with any statement under Article 1	
		pages	, filed with the demar	
		pages .	, filed with the letter of	
		the draw	wings:	
		pages	, as originally file	ed
		pages	, filed with the deman	ıd
		pages	, filed with the letter of	
	С.			_
	، لـــا	•	nce listing part of the description:	i
		pages .	, as originally file	
		pages	, filed with the deman	
		pages	, filed with the letter of	_
	the ir	nternation	o the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which all application was filed, unless otherwise indicated under this item. Its were available or furnished to this Authority in the following language which i	
		the lang	guage of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).	-
		the lang	guage of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).	
		the lang	guage of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and).	d/
3.	With preli	regard minary ex	to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the internation camination was carried out on the basis of the sequence listing:	al
		contain	ned in the international application in written form.	
	Ħ		gether with the international application in computer readable form.	
	Ħ	•	ed subsequently to this Authority in written form.	
	Ħ		ed subsequently to this Authority in computer readable form.	
	H			
		internat	atement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the tional application as filed has been furnished.	
	Ш		atement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing harmished.	ıs
4.		The am	nendments have resulted in the cancellation of:	
		<u> </u>	the description, pages	
		<u> </u>	the claims, Nos.	-
			the drawings, sheets/fig	
5.			out has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to gethe disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**	;o
	in th		cheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.1)	
		,	ent sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.	



./



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

tatement			
Novelty (N)	Claims	1-8	YES
	Claims		NO NO
Inventive step (IS)	Claims	1-8	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-8	YES
	Claims		NO

None of the documents cited in the ISR describes the flame retardants of the structure expressed by general formula (1) of claims 1-8 and resin compositions containing the said flame retardants, and it is considered that these features could not have easily been conceived by a person skilled in the art on the basis of these documents.





!

協力条約

PEC'D 12 SEP 2000 WIPO PCT

3 4 9 5

電話番号 03-3581-1101 内線

PCT

国際予備審查報告

(法第12条、法施行規則第56条) [PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 DC3378PC	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。				
国際出願番号 PCT/JP00/04004	国際出願日 (日.月.年) 19.06.00 優先日 (日.月.年) 09.07.99				
国際特許分類 (IPC) Int. Cl ⁷	C08K5/527, C08L101/00, C09K21/12				
出願人(氏名又は名称) 大八化学工業	株式会社				
	国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。 ほを含めて全部で 3 ページからなる。				
この国際予備審査報告には、阿					
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。					
I X 国際予備審査報告の基礎					
Ⅱ 優先権					
Ⅲ □ 新規性、進歩性又は産業	上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成				
IV 発明の単一性の欠如					
V X PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるため					
の文献及び説明 VI bる種の引用文献					
VII 国際出願の不備					
VIII 国際出願に対する意見					
国際予備審査の請求書を受理した日 26.07.00	国際予備審査報告を作成した日 21.08.00				
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4者	藤本 保 印				

			•
		ì	
			,
· ·			





国際予備審查報告

国際出願番号 PCT/JP00/04004

I. E	際予備審査幸	報告の 基礎		
応		こ提出された差し替え用紙は		れた。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に おいて「出願時」とし、本報告書には添付しない。
X	出願時の国際	奈出願書類		
	明細書 明細書 明細書	第 第 ==================================	ページ、 ページ、 ページ、 ページ、	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの 付の書簡と共に提出されたもの
	請求の範囲 請求の範囲 請求の範囲 請求の範囲	第 第 第 	項、 項、 	出願時に提出されたもの PCT19条の規定に基づき補正されたもの 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの 付の書簡と共に提出されたもの
	図面 図面 図面	第 第 第	ページ/図、 ページ/図、 ページ/図、	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの 付の書簡と共に提出されたもの
ر_ا	明細書の配列	刊表の部分 第 刊表の部分 第 刊表の部分 第	ページ、 ページ、 ページ、	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの 一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一
2. 上	記の出願書類	頁の言語は、下記に示す場合	を除くほか、こ	の国際出願の言語である。
上	記の書類は、	下記の言語である		ა .
	PCT規	のために提出されたPCT規 則48.3(b)にいう国際公開の 審査のために提出されたPC	言語	
3. こ	の国際出願に	は、ヌクレオチド又はアミノ	酸配列を含んで	おり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。
	この国際 出願後に 出願後に 書の提出 書のによ	提出した書面による配列表が があった	・シブルディスク は調査)機関に抵 は調査)機関に抵 は関時における	
	証により、「 明細書 請求の範囲 図面	F記の書類が削除された。 第 第 図面の第	項	ジ / 図
5.	れるので、そ		として作成した	が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認めら。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上告に添付する。)

, in Spirit

国際予備審査報告

国際出願番号 PCT/JP00/04004

見解		
元 7年		
新規性 (N)	請求の範囲 1-8	有
	請求の範囲	
進歩性(IS)	請求の範囲 1-8	有
	請求の範囲	
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲 1-8	有
	請求の範囲	
文献及び説明(PCT規則70.7)		
国際調査報告で引用したいで	ドれの文献にも、請求の範囲1−8↓ 5難燃剤及び該難燃剤を含有する樹 域から当業者が容易に想到しうるも○	こ記載の一般式 影響は無い記載され
(1) で衣される悔垣を有する (おらず、また、該文献の記載	o 難燃剤及ひ該難燃剤を召有する個別 はから当業者が容易に想到しうるも(眉組成物は記載され のであるとも認めら
いない。	は、ショ来省や石物に心力してある。	

, !